

INVERSÃO ITERATIVA DE DADOS DE ESPECTROMETRIA GAMA OU ALFA

DANIEL JEAN ROGER NORDEMANN

*Instituto de Pesquisas Espaciais – INPE
C.P. 515, 12201 – São José dos Campos, SP, Brasil*

In this work, gamma and alpha-ray spectrometry data are processed by an iterative regression method (Wolberg, 1967) to obtain the activities or yields of radionuclides. This method, applied to Nuclear Geophysics Research, permits the use of either selected energy bands or of all the channels one by one. It may be easily programmed in popular microcomputers and offers many advantages such as the use of mixtures of radionuclides for the calibrations and the treatment of the uncertainties on the measurements and results. The listing of the program written in BASIC, several conclusions about the method and options of nuclear data processing are presented.

INTRODUÇÃO

A determinação das atividades ou dos teores de radionuclídeos a partir de medidas de espectrometria alfa ou gama requer o conhecimento dos rendimentos de detecção apropriados nas faixas de energia escolhidas nos espectros considerados (Crossley & Reid, 1982). O caso dos espectros de baixa resolução (detector NaI(Tl) por exemplo), mesmo com um número não muito grande de canais, tipicamente inferior a 300, revela ser já bastante complicado e leva a empregar métodos aproximados de aproveitamento incompleto dos dados e de difícil avaliação das incertezas. O método descrito neste trabalho não exige o emprego de padrões de apenas um emissor e apresenta vantagens que serão expostas e discutidas mais adiante.

REGRESSÃO: MÉTODO EMPREGADO

Um espectro é constituído dos valores $Y(I,C)$ das contagens provenientes do detector, tratadas por um analisador de pulsos. O conteúdo $Y(I,C)$ do canal C do espectro I é igual à soma das contribuições $A(J,C) \cdot X(J,I)$ dos emissores J , cujos teores são $X(J,I)$, sendo $A(J,C)$ os valores dos rendimentos de detecção no canal C . As calibrações permitem determinar os rendimentos $A(J,C)$ usando medidas de padrões misturados dos elementos J com teores $X(J,I)$ conhecidos. As medidas objetivam determinar os teores $X(J,I)$, uma vez que os rendimentos $A(J,C)$ sejam conhecidos, para a mesma geometria de detecção. Em ambos os casos, o problema é evidentemente linear.

No exemplo escolhido, emprega-se o método de regressão por iteração indicado por Wolberg (1967) e descrito também por Shalev (1977). É um método que se aplica à adaptação ("fitting") de conjuntos de pontos experimentais a funções analíticas apenas deriváveis em relação às variáveis e aos parâmetros incógnitos. Este método não passa pela linearização prévia exigida pelo método clássico. Além disto, ele permite introduzir no tratamento de cada ponto experimental um peso, levando em conta a qualidade da sua medida através das incertezas sobre suas coordenadas $X(J,I)$

e $Y(I,C)$. Ele é de fácil adaptação a computadores e microcomputadores, embora o número P dos parâmetros incógnitos não deva ser grande demais, devido à necessidade de inverter matrizes $P \cdot P$, sendo que os pequenos sistemas podem não dispor de sub-rotinas especializadas para esta tarefa.

Para não tornar as explicações fastidiosas e longas demais, apenas os princípios básicos do método serão expostos, usando as notações empregadas na descrição de Wolberg (1967) e adaptadas à linguagem BASIC usada no programa anexo. O caso das medidas será derivado do tratamento das calibrações, com a devida inversão de papel entre os $A(J,C)$ e os $X(J,I)$ incógnitos e, desta vez, os somatórios são feitos sobre os canais e não sobre as calibrações I . O exemplo será limitado ao tratamento de espectros limpos (ruído de fundo já deduzido, antes da regressão), os quais são resultantes da combinação de três contribuições $J=1, 2$ e 3 que podem ser as devidas à radiação gama do potássio (K^{40}), do urânio (Bi^{214}) e do tório (Tl^{208}) contidos numa amostra de rocha terrestre e que aparecem no espectro obtido com um detector de iodeto de sódio ativado com tálio NaI(Tl) tipicamente de baixa resolução. A aplicação a outros casos (outros detectores e/ou outros emissores) não apresentará dificuldades maiores, como exceção das que são ligadas ao número de parâmetros e de incógnitas e aos possíveis problemas de convergência das iterações.

Nas calibrações, o método tratará apenas um canal de cada vez, visando obter os valores $A(J,C)$ para $J=1, 2$ e 3 a partir de seus valores iniciais indicados arbitrariamente. Ele visa determinar para cada iteração os valores corretivos $Z(J)$ a serem aplicados aos parâmetros incógnitos $A(J,C)$. Esses valores $Z(J)$ serão a solução de um sistema linear, cujos elementos serão constituídos por somatórios calculados usando os valores experimentais $Y(I,C)$, os valores iniciais ou anteriores $A(J,C)$, os teores $X(J,I)$ e as incertezas associadas aos Y e aos X , caso sejam conhecidos ou fáceis de determinar.

No método usado por Wolberg (1967), é definida uma função F :

$$F = Y(I,C) - \sum_{J=1}^3 A(J,C) * X(J,I) \quad (1)$$

que representa o resíduo entre a medida Y e o seu valor calculado pela soma dos $A * X$. Existe um valor de F por canal (fórmula 1), por medida e por iteração, porém F não necessita de índice por ser "renovável" e aparecer dentro dos "loops" elementares geradores dos somatórios do sistema.

As derivadas de F são:

$$F_Y = \frac{\partial F}{\partial Y} = 1, \quad (2)$$

$$F_{X(J,I)} = \frac{\partial F}{\partial X(J,I)} = -A(J,C), \quad (3)$$

$$F_{A(J,C)} = \frac{\partial F}{\partial A(J,C)} = -X(J,I). \quad (4)$$

O peso L para a medida I e para o canal C é calculado em função das incertezas σ_Y e $\sigma_{X(J,I)}$ sobre os valores de Y e dos X , respectivamente:

$$L = F_Y^2 \sigma_Y^2 + \sum_{J=1}^3 (F_{X(J,I)} * \sigma_{X(J,I)})^2, \quad (5)$$

$$L = \sigma_Y^2 = Y(I,C) \quad \text{com} \quad \sigma_{X(J,I)} = 0 \quad (6)$$

(isto é válido no caso de uma contagem nuclear, não sendo incorporado neste termo as incertezas e os erros sistemáticos sobre os teores dos padrões).

Calculam-se os somatórios:

$$C(J,K) = C(K,J) = \sum F_{A(J,C)} * F_{A(K,C)} / L \\ = \sum X(J,I) * X(K,I) / L, \quad (7)$$

$$V(J) = \sum F_{A(J,C)} * F / L = \sum -X(J,I) * F / L, \quad (8)$$

onde os elementos de matriz $C(J,K)$ são os elementos de um sistema linear:

$$C Z = V \quad (9)$$

Os 3 valores de Z são os termos corretivos $Z(1)$, $Z(2)$ e $Z(3)$ a serem aplicados aos valores de $A(J,C)$. Uma sub-rotina realiza a inversão do sistema. Esta sub-rotina é simples no caso de apenas três parâmetros incógnitos. A ampliação para quatro parâmetros pode ainda ser feita sem dificuldade; porém, para cinco ou mais parâmetros é conveniente usar sub-rotinas disponíveis para este fim.

Os termos corretivos são aplicados aos valores usados no início da iteração:

$$A(J,C) = A(J,C) - Z(J) \quad J = 1, 2, 3 \quad (10)$$

e a soma quadrática dos termos corretivos é testada para avaliar a necessidade de continuação das iterações. Se esta soma for bastante pequena, sai-se do "loop" das iterações e mostram-se na tela do monitor os valores achados. Testa-se também a divergência possível do processo que leva, evidentemente, à eliminação do canal correspondente. Uma opção original foi usada para simplificar o programa: trata-se do uso das mesmas sub-rotinas para as calibrações e para as medidas, sendo as duas opções orientadas pela constante CA que age como "flag" ($CA = 1$ para as calibrações e $CA = 0$ para as medidas).

PROGRAMA REDIGIDO EM LINGUAGEM BASIC PARA IMPLANTAÇÃO EM MICROCOMPUTADOR DA LINHA TK SINCLAIR

No Anexo I, apresenta-se a listagem do programa redigido em linguagem BASIC e implantado num microcomputador da linha TK-Sinclair. Trata-se de uma versão completa, embora simples, que já dispõe das facilidades ou opções de tratamento das incertezas, tal como as incertezas associadas às contagens nucleares e os erros sistemáticos provenientes das calibrações dos padrões usados.

O programa foi redigido numa linguagem BASIC relativamente elementar e fácil de entender. Por isto não se trata da versão mais rápida ou mais econômica em espaço de memória. Existe uma versão mais complexa e bem mais compacta que dispensa o uso direto de dados numéricos no programa BASIC e/ou nas tabelas de dados, o que é conseguido usando variáveis literais (em geral, uma variável de uma letra para números pequenos e de uso mais freqüente) e empacotamento de dados em tabelas de correntes de caracteres ("character string") a razão de 2 caracteres (2 "bytes") por inteiro positivo inferior a 65536.

SIMULAÇÃO E TESTES

O programa foi testado de várias maneiras, usando espectros que simulam a soma das contribuições de três emissores. Não houve motivo para simular o aspecto clássico dos espectros gama ou alfa, porém cuidados foram tomados para evitar espectros que fossem combinações lineares; a mesma precaução foi aplicada também aos padrões. Um procedimento lógico bastante simples foi seguido em todos os casos: as condições foram escolhidas (por exemplo, número de calibrações ou de medidas: 6; número de canais por espectro: 30; valores dos teores dos padrões); os espectros simulados foram calculados (sem ou com flutuações adicionais); o programa foi rodado para determinar os valores dos rendimentos e, em seguida, foram tratados os mesmos espectros (sem ou com flutuações adicionais) como espectros de medida para determinar os teores e os seus respectivos erros: estes últimos resultados foram comparados aos valores iniciais, a fim de avaliar o desempenho do método e do seu programa, e obter conclusões sobre as qualidades e defeitos do tratamento. Os testes preliminares

descritos neste trabalho foram feitos sobre espectros de 10 e 30 canais. Porém, o método foi testado com sucesso sobre espectros de 256 canais, observando um aumento nítido da duração dos cálculos além da necessidade de levar em conta a maior ocupação da memória da máquina.

Em primeiro lugar, o tratamento como padrões de espectros calculados, sem acréscimo de flutuações ou erros sistemáticos, seguido do tratamento dos mesmos espectros como medidas, fornece os valores iniciais dos teores que foram usados, e sem erro, o que era evidentemente esperado. A introdução artificial de flutuações estatísticas nos espectros acrescenta erros nos resultados de maneira signi-

ficativa, como aparece na Tabela 1. O caso dos valores e resultados apresentados nesta tabela é típico e representativo de muitos casos tratados da mesma maneira. São 6 espectros de 30 canais cada, calculados para teores arbitrários (linha 65) e acrescidos de erros que seguem uma distribuição semelhante à distribuição gaussiana (linha 65). Os teores iniciais (dos padrões) e os calculados (resultados das medidas simuladas) são apresentados. Em geral, a diferença entre estes valores não é muito grande. Em alguns casos, o erro final é relativamente elevado; são medidas prejudicadas pelo valor elevado do teor de um dos outros elementos.

Tabela 1 — Teores e espectros dos seis padrões

Padrão/Amostra		1	2	3	4	5	6
K	Initial	1	4	10	17	11	0
	Calculado	2,63 ± 0,95	2,90 ± 0,96	11,8 ± 1,8	11,5 ± 2,3	7,37 ± 3,55	2,20 ± 2,20
U	Initial	3	1	13	9	20	5
	Calculado	2,57 ± 0,14	1,17 ± 0,13	12,5 ± 0,3	10,0 ± 0,3	20,2 ± 0,5	4,71 ± 0,33
Th	Initial	7	5	3	1	0	14
	Calculado	6,65 ± 1,57	2,04 ± 1,81	1,42 ± 2,93	1,11 ± 3,87	0,79 ± 6,0	12,9 ± 4,2
Canal	Espectro	Conteúdos:					
1	Padrão	11	10	18	27	30	17
	Medida	10	10	24	23	31	26
2	Padrão	20	14	75	70	119	32
	Medida	19	12	76	76	85	40
3	Padrão	31	27	153	157	214	39
	Medida	42	20	151	122	189	48
4	Padrão	42	26	245	215	337	69
	Medida	40	27	261	215	381	60
5	Padrão	72	31	346	310	558	99
	Medida	62	52	364	326	558	112
6	Padrão	127	59	490	407	791	182
	Medida	108	66	536	421	765	174
7	Padrão	134	73	711	561	1063	261
	Medida	159	69	761	577	1057	281
8	Padrão	232	98	908	719	1904	359
	Medida	199	95	872	704	1358	314
9	Padrão	260	119	1020	835	1720	450
	Medida	255	122	1101	900	1671	437
10	Padrão	311	127	1390	1072	2110	509
	Medida	297	138	1330	1063	2104	505

ADAPTAÇÃO E INTEGRAÇÃO DO PROGRAMA

A versão do programa aqui apresentada foi testada no caso de espectros limpos (ruído de fundo já deduzido) ou de espectros para os quais o ruído de fundo é desprezível. Se houver necessidade de deduzir um ruído de fundo dos espectros e de tratar espectros obtidos em tempos diferentes, ter-se-ia de modificar as linhas 32 (substituir N por $N + 1$), 3086 (valor limpo) e 3091 (quadrado do desvio padrão), levando em conta nestas duas últimas linhas o valor do ruído de fundo e, se for necessário, as respectivas durações das medidas e do ruído de fundo.

PRINCIPAIS CONCLUSÕES

O método de regressão indicado por Wolberg (1967) adapta-se facilmente ao problema da espectrometria alfa ou gama (medidas com resolução fraca e apenas três emissores naturais K, U e Th) porque o caso foi reduzido a poucos parâmetros (três rendimentos para cada canal nas calibrações e três teores incógnitos por espectro gama nas medidas). A convergência nas iterações é muito rápida (até apenas duas iterações para chegar ao valor da soma quadrática dos termos corretivos inferiores a 10^{-6}). Isto é somente válido para medidas de qualidade suficientemente boa.

O método permite levar em conta as incertezas e os erros. Há necessidade de distinguir entre as incertezas associadas às flutuações das contagens nos canais e os erros sistemáticos sobre os valores dos teores dos padrões. O método permite usar na regressão pesos diferentes para cada medida ou cada canal, com o intuito de melhorar o resultado final. Vale salientar que os erros sistemáticos são inseridos no erro do resultado apenas na parte final, para não conta-

minar o peso usado na regressão por um erro sistemático uniformemente forte, o que faria perder a vantagem do uso dos pesos.

Uma vantagem deste método, além das facilidades ligadas ao uso de um microcomputador, reside no aproveitamento do espectro inteiro, o que permite minimizar a parte dos erros associados às incertezas das contagens; isto representa uma grande melhoria em relação a outros métodos, tal como o método da tangente (Nordemann, 1966). O método empregado neste trabalho não necessita de calibrações feitas com padrões de apenas um dos emissores como no caso de outros métodos (método da tangente, "stripping" simples); isto representa também uma grande vantagem, sendo que os padrões naturais de U e Th não-misturados são difíceis de obter.

Diante das vantagens reconhecidas do método de Wolberg (para regressão e previsão) recomenda-se a sua divulgação e o seu uso para um número maior de pesquisas.

REFERÊNCIAS

- CROSSLEY, D.J., REID, A.B. — 1982 — Inversion of gamma-ray data for element abundances. *Geophysics*, **47**: 117-126, Jan.
- NORDEMANN, D.J.R. — 1966 — Emissions gamma de quelques météorites e roches terrestres. Evaluation de la radioactivité du sol lunaire. Thèse Doct-ès-Sciences. Université de Paris. Rapport CEA-R 3017.
- SHALEV, S. — 1977 — GENFIT, A general least square fitting program for mini-computer. Instituto de Energia Atômica. Centro de Engenharia Nuclear. São Paulo. INF. IEA 57/CEN. AFR 16, junho.
- WOLBERG, J.R. — 1967 — Prediction analysis. Van Nostrand, Princeton.

ANEXO I
LISTAGEM DO PROGRAMA

```

1 REM Y(I,C)=A(J,C)*X(J,I)
9 FAST
14 LET N=6
18 LET V=30
21 DIM Y(N,V)
22 DIM A(3,V)
24 DIM X(4,N)
25 DIM Z(3)
30 LET E$="K U THT"
32 FOR I=1 TO N
33 GOTO 51
34 FOR C=1 TO V
36 PRINT "ESP.":I,,C
38 INPUT Y(I,C)
46 CLS
48 PRINT Y(I,C)
50 NEXT C
51 PRINT I;" ";
52 FOR J=1 TO 4
54 PRINT E$(J+J-1 TO J+J)
56 INPUT X(J,I)
58 NEXT J
59 NEXT I
60 STOP
61 FOR I=1 TO N
62 PRINT
63 PRINT I,,
64 FOR C=1 TO V
65 LET Y(I,C)=C*X(1,I)+C*C*X(2,I)+SIN C*X(3,I)
66 LET Y(I,C)=INT (Y(I,C)+.5+2.144*(SQR Y(I,C))*
(RND** 2)*SGN (RND-. 5))
70 NEXT C
72 NEXT I
88 STOP
90 LET CA=1
200 IF CA THEN FOR C=1 TO V
205 IF NOT CA THEN FOR I=1 TO N
210 GOSUB 2E3
550 IF CA THEN NEXT C
560 IF CA THEN GOTO 5E3
580 GOSUB 6E3
590 STOP
600 NEXT I
990 STOP
2010 FOR J=1 TO 3
2020 IF CA THEN LET A(J,C)=PI
2025 IF NOT CA THEN LET X(J,I)=PI
2030 NEXT J
3000 FOR R=1 TO 12
3050 DIM C(3,3)
3060 DIM V(3)
3065 LET S=0
3070 IF CA THEN FOR I=1 TO N
3075 IF NOT CA THEN FOR C=1 TO V
3076 IF NOT CA AND A(1,C)=PI THEN GOTO 3240
3086 LET F=Y(I,C)
3091 LET L=F
3100 FOR J=1 TO 3
3120 LET F=F-A(J,C)*X(J,I)
3140 NEXT J
3160 FOR J=1 TO 3
3170 FOR K=J TO 3
3180 IF CA THEN LET C(J,K)=C(J,K)+X(J,I)*X(K,I)/L
3185 IF NOT CA THEN LET C(J,K)=C(J,K)+A(J,C)*
A(K,C)/L
3190 NEXT K
3200 IF CA THEN LET V(J)=V(J)-X(J,I)*F/L
3205 IF NOT CA THEN LET V(J)=V(J)-A(J,C)*F/L
3210 NEXT J
3220 LET S=S+F *F/L
3230 IF CA THEN NEXT I
3240 IF NOT CA THEN NEXT C
3300 DIM D(3,3)
3310 LET D=C(1,1)*(C(2,2)*C(3,3)-C(2,3)*C(2,3))-
C(1,2)*(C(1,2)*C(3,3)-C(1,3)*C(2,3))+C(1,3)*
(C(1,2)*C(2,3)-C(1,3)*C(2,2))
3320 LET D(1,1)=(C(2,2)*C(3,3)-C(2,3)*C(2,3))/D
3330 LET D(2,2)=(C(1,1)*C(3,3)-C(1,3)*C(1,3))/D
3340 LET D(3,3)=(C(1,1)*C(2,2)-C(1,2)*C(1,2))/D
3350 LET D(1,2)=(C(1,3)*C(2,3)-C(1,2)*C(3,3))/D
3360 LET D(1,3)=(C(1,2)*C(2,3)-C(1,3)*C(2,2))/D
3370 LET D(2,3)=(C(1,2)*C(1,3)-C(1,1)*C(2,3))/D
3380 LET D(3,2)=D(2,3)
3390 LET DD=0
3400 FOR J=1 TO 3
3410 LET Z(J)=D(1,J)*V(1)+D(J,2)*V(2)+D(J,3)*V(3)
3420 LET DD=DD+Z(J)*Z(J)
3430 NEXT J
3440 CLS
3450 IF CA THEN PRINT "CAL.":"C = ";C
3460 IF NOT CA THEN PRINT "MED.":"I = ";I
3470 PRINT "R =";R,,"S =";S,,"DD=" ; DD
3500 FOR J=1 TO 3
3510 IF CA THEN LET A(J,C)=A(J,C)-Z(J)
3520 IF NOT CA THEN LET X(J,I)=X(J,I)-Z(J)
3530 NEXT J
3580 LET SS=S/(V-3)
3590 IF CA THEN GOSUB 4E3
3600 IF DD<1E-6 THEN NEXT R
3610 IF CA AND R=13 AND DD>1E3 THEN LET
A(1,C)=PI
3900 RETURN
4010 LET SS=S/(N-3)
4020 FOR J=1 TO 3
4030 PRINT "A(" ;J ;"," ;C ;")=" ;A(J,C)
4040 NEXT J
4050 PAUSE 99
4090 RETURN

```

```

5010 FOR C=1 TO V
5020 IF A(1,C)=PI THEN PRINT "DIV. PARA C=" ; C
5030 NEXT C
5040 LET CA=NOT PI
5090 STOP
6010 FOR J=1 TO 3
6020 PRINT "X(" ; J ; "," ; I ; ")=" ; INT (1E3*X(J,I))/
      1E3 ; " + / - " ; INT (1E3*SQR(SS*D(J,I) +
      E*X(J,I)+X(J,I))/1E3
6030 NEXT J
6090 RETURN
9000 SAVE "PRANA"
9500 PRINT VAL "PEEK 16386-PEEK 16412-256 *
      (PEEK 16387-PEEK 16413)"
9999 REM 10:00 15/10/85 DN

```

DESCRIÇÃO DO PROGRAMA

Linha	1 -	:	Fórmula fundamental
	9 -	25 :	Inicialização (apenas uma vez)
	30 -	88 :	Entrada dos dados e/ou geração de espectros
	90	:	Inicialização para calibrações
	100 -	600 :	"Loop" principal

200 -	550 :	"Loop" das calibrações para os canais
205 -	600 :	"Loop" das medidas
210	:	Chamada da sub-rotina das iterações
560	:	Chamada da sub-rotina de impressão (na tela) dos casos de divergência
580	:	Chamada da sub-rotina de impressão dos teores
2010 -	2030 :	Inicialização dos valores dos A ou dos X
3000 -	3600 :	"Loop" das iterações
3050 -	3065 :	Inicialização para cada iteração
3070 -	3240 :	Cálculo dos somatórios
3300 -	3430 :	Inversão do sistema
3440 -	3580 :	Impressão e aplicação dos termos corretivos
3590	:	Chamada da sub-rotina de impressão dos A
3610	:	Diagnóstico de divergência
3900	:	Volta ao "loop" principal
4010 -	4090 :	Impressão dos A
5010 -	5090 :	Impressão dos casos de divergência e fim das calibrações
6010 -	6090 :	Impressão dos X
9000	:	Gravação em fita magnética
9500	:	Avaliação da memória disponível